



## Evolution des propriétés mécaniques du carbure de silicium sous irradiation aux ions

Magalie Ménard, Marion Le Flem, Lionel Gélébart, Michel Boussuge

### ► To cite this version:

Magalie Ménard, Marion Le Flem, Lionel Gélébart, Michel Boussuge. Evolution des propriétés mécaniques du carbure de silicium sous irradiation aux ions. Matériaux 2006, 2006, Dijon, France. 5 p. hal-00144501

**HAL Id: hal-00144501**

**<https://hal.science/hal-00144501>**

Submitted on 3 May 2007

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## Evolution des propriétés mécaniques du carbure de silicium sous irradiation aux ions

M. Ménard<sup>a</sup>, M. Le Flem<sup>a</sup>, L. Gélébart<sup>a</sup>, M. Boussuge<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Commissariat à l'Energie Atomique, Centre d'études de Saclay, DEN/DMN/SRMA, 91191 Gif Sur Yvette –  
magalie.menard@cea.fr, marion.leflem@cea.fr, lionel.gelebart@cea.fr

<sup>b</sup> ENSMP - Centre des Matériaux P.M. Fourt - U.M.R. CNRS 7633 - 91003 Evry cedex -  
michel.boussuge@ensmp.fr

---

### **RESUME:**

Le carbure de silicium (SiC), en raison de ses propriétés réfractaires et de sa bonne compatibilité avec le flux neutronique, est retenu pour constituer les pièces de structure des cœurs des réacteurs nucléaires de future génération. L'influence d'une irradiation aux ions Xe (95 MeV) en température (400°C), aux fluences comprises entre  $3,0.10^{14}$  et  $3,6.10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>, sur la microstructure et le comportement mécanique d'un  $\alpha$ -SiC polycristallin est étudié. En raison de la faible épaisseur endommagée (~10  $\mu$ m), les modifications des propriétés mécaniques du SiC (module d'élasticité, dureté) induites par irradiation ont dans un premier temps été évaluées par des caractérisations de surface (spectroscopie Raman, nanoindentation, microscopie acoustique).

**MOTS-CLES :** Carbure de silicium, Irradiation, Nanoindentation.

---

## 1. Introduction

Les composites à matrice céramique, tels que SiC/SiC font partie des matériaux envisagés pour constituer les pièces de structure des cœurs des réacteurs nucléaires de future génération, notamment comme matrice de confinement des produits de fission ou comme matériau de structure. En condition de fonctionnement nominale, la température de ces composants est estimée à 500-800°C et atteindrait 1600°C en situation accidentelle. Malgré une littérature relativement étayée sur les modifications microstructurales du SiC induites par une irradiation, les travaux traitant du comportement mécanique de ce matériau restent peu nombreux, particulièrement à hautes températures ( $T > 1000^\circ\text{C}$ ) et sous irradiation.

La présente étude propose donc de préciser le comportement mécanique du  $\alpha$ -SiC (structure hexagonale) après irradiation au travers de caractérisations préliminaires conduites à l'ambiante. Afin de simuler l'effet des neutrons, les échantillons sont irradiés par des ions lourds, à 400°C.

## 2. Protocole expérimental

Le carbure de silicium polycristallin étudié (Hexoloy SA, Saint Gobain), de structure hexagonale, est élaboré par frittage naturel, au-dessus de 2000°C, à partir d'une poudre submicronique à laquelle sont ajoutés des éléments, tels que le bore ou le carbone, améliorant sa densification. La taille de grains moyenne du SiC est inférieure à 10  $\mu\text{m}$ .

Des irradiations ont été conduites au GANIL [1] sur 10 échantillons ( $24 \times 4 \times 2 \text{ mm}^3$ ), sous des ions Xe de 95 MeV, à 400°C, température supérieure à la température seuil d'amorphisation du  $\alpha$ -SiC [2]. Cinq niveaux de fluence ont ainsi été obtenus pour une densité de courant de faisceau voisine 1  $\mu\text{A}$ .

Des simulations au moyen du programme SRIM-2003 (Stopping and Range of Ions in Matter [3]) permet d'évaluer le pouvoir d'arrêt des ions Xe dans le SiC, ainsi que la teneur en dommages. La densité du  $\alpha$ -SiC retenue est de  $3,21 \cdot 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ , les énergies seuil de déplacement du C et du Si sont respectivement de 20 et 35 eV [4,5]. Les fluences maximales atteintes sont comprises entre  $3,0 \cdot 10^{14}$  et  $3,6 \cdot 10^{15} \text{ ions/cm}^2$  (Figure 1).

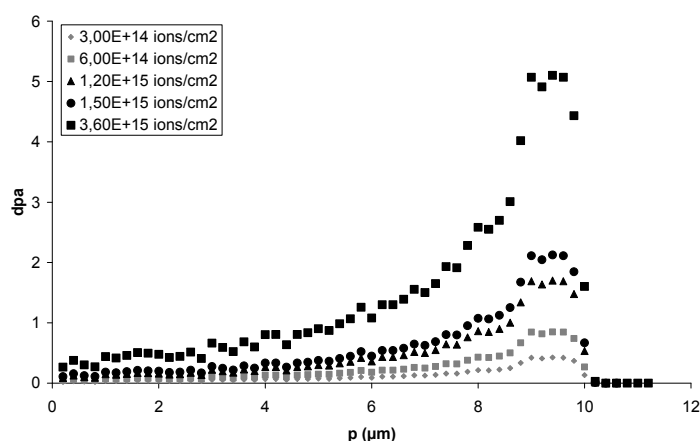


Figure 1 Distribution des dommages d'irradiation aux ions Xe (95 MeV), à 400°C, dans du  $\alpha$ -SiC en fonction de l'épaisseur.

Des analyses en spectroscopie Raman sont conduites pour identifier les transformations de structure cristalline du SiC induites par irradiation. Les informations sont collectées en géométrie rétrodiffusée à l'aide d'un micro-spectromètre Jobin-Yvon T64000. La longueur d'onde du laser est de 514,5 nm et la puissance est de 30 mW. La résolution spectrale est de  $1 \text{ cm}^{-1}$  et la taille du spot laser est de  $1 \mu\text{m}^2$ .

Le module d'élasticité  $E$  et la dureté  $H$  sont mesurés par nanoindentation Berkovich. Le nombre d'empreintes réalisées est de 10 à force imposée ; cette dernière étant fixée à 8, 20, 80, 200, 800 et 2000 mN. Chaque échantillon a donc fait l'objet de 60 indentations. Les évolutions de la dureté et du module d'élasticité après irradiation sont obtenues par indentations aux profondeurs situées entre 1400 et 1800 nm. Dans cette gamme de profondeur, les dommages d'irradiation sont considérés homogènes à une condition d'irradiation donnée et varient de 0,04 dpa à 0,5 dpa (Figure 1). L'évolution du module d'élasticité après

irradiation a également été mesurée par microscopie acoustique. La fréquence utilisée est de l'ordre de 160 MHz, ce qui permet de sonder le matériau sur une profondeur de 10  $\mu\text{m}$ .

### 3. Résultats

Le spectre Raman d'un échantillon de  $\alpha$ -SiC non irradié est représenté en Figure 2a. Quatre bandes principales, situées entre 700 et 1000  $\text{cm}^{-1}$ , caractérisent la structure du SiC cristallin et correspondent aux modes actifs d'une structure de type wurtzite ( $C6_v$ , polytypes hexagonaux) ; ces résultats sont en accord avec la littérature [6-8].

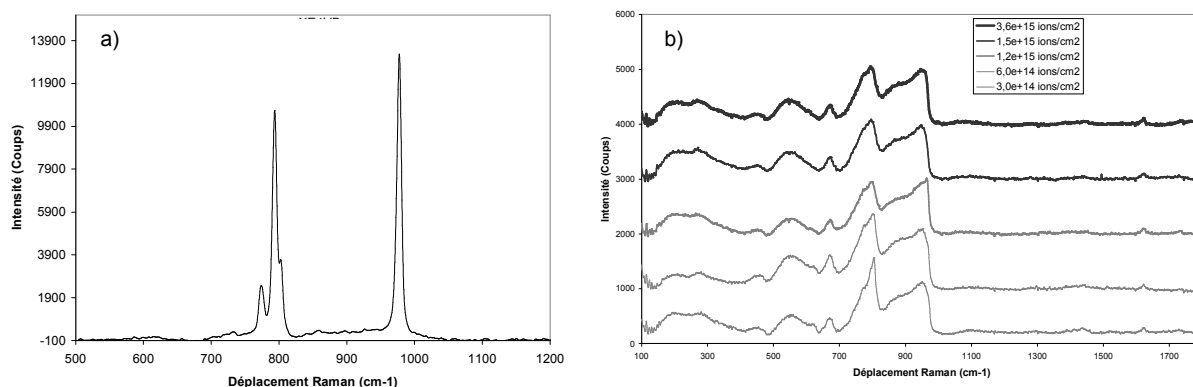


Figure 2 Spectres Raman d'un échantillon de  $\alpha$ -SiC non irradié (a) et irradié (Xe, 95 MeV, 400°C).

Les échantillons irradiés présentent des spectres de Raman similaires, aux cinq niveaux de fluences envisagés (Figure 2b). Une diminution de l'intensité et un élargissement des pics Raman relatifs au SiC cristallin sont observés après irradiation. Par ailleurs, les spectres des échantillons irradiés présentent trois nouvelles bandes, à 200, 560 et 680  $\text{cm}^{-1}$ , attribuées respectivement à la présence de Si amorphe et d'une structure désordonnée de SiC [8-15]. Des liaisons homonucléaires Si-Si se forment donc dès 0,05 dpa (Figure 1). La quatrième bande située vers 800  $\text{cm}^{-1}$  est attribuée aux vibrations du SiC cristallin fortement désordonnée.

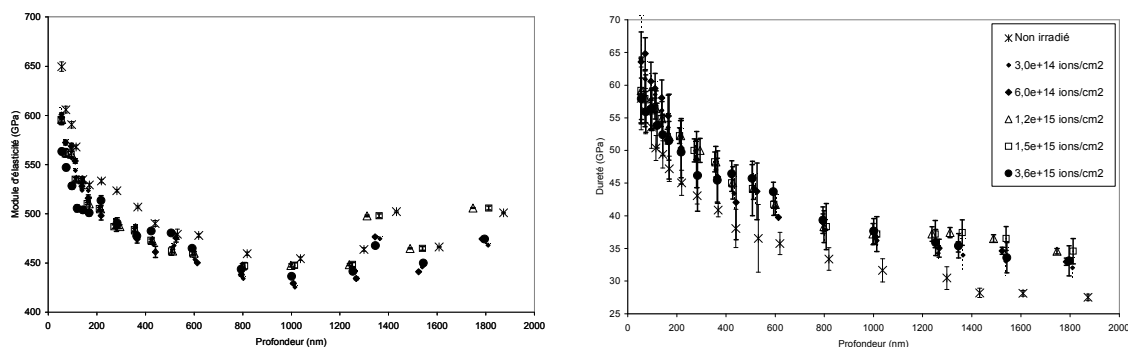


Figure 3 Evolutions de E (a) et de H (b) du SiC en fonction de la profondeur obtenues par nanoindentation.

Une faible augmentation, de l'ordre de 5 %, du module d'élasticité E est mesurée après irradiation par microscopie acoustique, tandis que les mesures par nanoindentation n'en montrent pas de variations significatives. La valeur moyenne de la dureté H présente une augmentation de l'ordre de 15% quelle que soit la fluence (Figures 3).

Par ailleurs, le mode de fissuration générée par indentation évolue après irradiation. La plupart des échantillons irradiés présentent une longueur de fissure moyenne inférieure à celle des échantillons non irradiés et une tendance à l'écaillage plus importante.

#### 4. Discussion

Les dommages microstructuraux induits par irradiation se caractérisent en spectroscopie Raman par une diminution de l'intensité des pics liés au SiC cristallin et par l'apparition de nouvelles bandes de vibration, correspondant aux liaisons homonucléaires S-Si à l'intérieur du réseau SiC, et à une structure de SiC désordonnée. Cette dernière, formée par la distorsion des angles de liaisons Si-C, résulte en un ordre à courte distance, alors que l'ensemble du réseau tétraédrique est conservé. Cette structure peut être définie comme un état transitoire entre l'état cristallin et l'état amorphe [8,10]. A l'ambiante, cet état disparaît avec la fluence, tandis qu'une irradiation à une température supérieure à la température maximale d'amorphisation conduit à une stabilisation de l'état transitoire et à une limitation de l'accumulation des dommages favorisant le recuit dynamique des défauts [8]. Sorieul *et al.* constate sur des monocristaux de  $\alpha$ -SiC que l'élévation de la température d'irradiation prolonge la stabilité de l'état transitoire jusqu'à des doses d'irradiation de l'ordre de 26,4 dpa. Par ailleurs, l'apparition de la bande de désordre à  $580\text{ cm}^{-1}$  est indépendante de la nature de l'ion (Au ou Xe) et résulte donc d'un effet d'irradiation.

L'augmentation de la dureté est également observée sur du SiC irradié aux ions ou aux neutrons et peut s'accompagner d'une diminution du module d'élasticité [16, 17]. Les effets d'une irradiation sur la dureté de la région analysée par indentation paraissent toutefois être dépendants de la présence de phase amorphe [18-20]. La diminution de la dureté, de l'ordre de 40%, est attribuée à la présence d'une couche amorphe à la surface du SiC. Pour une fluence de  $6.10^{14}\text{ ions.cm}^{-2}$ , aucune phase amorphe n'est formée et une hausse de 10% de la dureté est alors mesurée [20].

Dans cette étude, l'écaillage relativement important provoqué par indentation des échantillons irradiés semble toutefois être l'expression de contraintes de compression générées par les défauts d'irradiation. Ces derniers, susceptibles d'être responsables de zones amorphes dans le SiC, tendent en effet à induire un gonflement hétérogène du SiC. La diminution de la longueur des fissures générées par indentation après irradiation suggère un accroissement de la ténacité apparente du SiC. Les observations fractographiques de Katoh *et al.* conduites sur des échantillons de  $\beta$ -SiC irradiés aux neutrons à  $800^\circ\text{C}$  suggèrent que l'irradiation augmente l'énergie de clivage [21]. Ceci pourrait contribuer à l'augmentation de la résistance à l'amorçage et à la propagation de fissure et ainsi accroître la dureté mesurée par indentation.

#### 5. Conclusion

Les modifications structurales du  $\alpha$ -SiC polycristallin induites par une irradiation aux ions Xe (95 MeV) à  $400^\circ\text{C}$  résultent en l'apparition de zones amorphes de Si et d'une phase désordonnée de SiC cristallin, aux fluences comprises entre  $3,0.10^{14}\text{ ions/cm}^2$  et  $3,6.10^{15}\text{ ions/cm}^2$ . Les caractérisations préliminaires des propriétés mécaniques du SiC montrent une augmentation de la dureté de l'ordre de 15% après irradiation, tandis que le module d'élasticité reste stable, ainsi qu'une résistance accrue à l'amorçage et à la propagation de fissures.

#### Remerciements

Les auteurs remercient Isabelle Monnet du Ganil (Caen) pour la réalisation des irradiations, ainsi que Sylvain Gailliègue de l'ENSMP (Evry) et Virginie Basini du CEA de Cadarache pour les essais mécaniques. Une partie de ce travail est soutenu par le GdR Nomade.

#### References

- [1] <http://www.ganil.fr>
- [2] Jiang W., Weber W.J., Zhang Y., Thevuthasan S., Shutthanandan V., Ion beam analysis of irradiation effects in 6H-SiC, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 207, 92–99, 2003.
- [3] Ziegler F., Biersack J.P., Littmark U., The stopping and range of ions in solids, New York, 1985.
- [4] Devanathan R., Weber W.J., Displacement energy surface in 3C and 6H SiC, Journal of Nuclear Materials, 278, Issue 2-3, 258-265, 2000
- [5] Lucas G., Pizzagalli L., Comparison of threshold displacement energies in  $\alpha$ -SiC determined by classical potentials and ab initio calculations, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 229, Issues 3-4, 359-366, 2005
- [6] Nakashima S., Harima H., Raman Investigation of SiC Polytypes, Phys. Stat. Sol. A, 162, Issue 1, 39-64, 1997

- 
- [7] Burton J.C., Sun L., Pophristic M., Lukacs S.J., Long F.H., Feng Z.C., Ferguson I.T., Spatial characterization of doped SiC wafers by Raman spectroscopy, *J. Appl. Phys.* 84, 6268-6273, 1998
  - [8] Sorieul S., Costantini J.M., Gosmain L., Thomé L. et Grob J.J., Raman spectroscopy study of heavy-ion-irradiated alpha-SiC, *J. Phys. Condens. Matter.* 18, 5235-5251, 2006
  - [9] Zwick A, Carles R, Multiple-order Raman scattering in crystalline and amorphous silicon, *Phys. Rev. B*, 48, 6024-6032, 1993
  - [10] Bolse W., Conrad J., Rödle T., Weber T., Ion-beam-induced amorphization of 6H-SiC, *Surf. Coat. Technol.*, Vol. 74-75, Part 2, 927-931, 1995
  - [11] Mélinon P., Blase X., Kéghélian P., Perez A., Ray C., Pellarin M., Broyer M., Si-C bonding in films prepared by heterofullerene deposition, *Phys. Rev. B*, 65, 125321, 2002
  - [12] Tuinstra F., Koenig J. L., Raman Spectrum of Graphite, *J. Chem. Phys.*, 53, Issue 3, 1126-1130, 1970
  - [13] Gilkes K. W., Sand H. S., Batchelder D. N., Robertson J., Milne W. I, Direct observation of  $sp^3$  bonding in tetrahedral amorphous carbon using ultraviolet Raman spectroscopy, *Appl. Phys. Lett.*, 70, Issue 15, 1980-1982, 1997
  - [14] Merkulov V I, Lannin J S, Munro C H, Asher S A, Veerasamy V S and Milne W I 1997 *Phys. Rev. Lett. UV Studies of Tetrahedral Bonding in Diamond like Amorphous Carbon* 78, 4869-4872, 1997.
  - [15] Ferrari A C and Robertson J 2000 *Phys. Rev. B*, Interpretation of Raman spectra of disordered and amorphous carbon, *Phys. Rev.*, B 61, 14095, 2000
  - [16] Park K.H., Kondo S., Katoh Y., Kohyama A., Mechanical Properties of  $\beta$ -SiC After Si- and Dual Si + He-Ion Irradiation at Various Temperatures, *Fusions Science and Technology*, 44, 455-459, 2003
  - [17] Nogami S., Hasegawa A., Snead L. L., Indentation fracture toughness of neutron irradiated silicon carbide, *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 307-311, Issue 2, 1163-1167, 2002
  - [18] McHargue C. J., Williams J.M., Ion implantation effects in SiC, *Nuclear Instruments and methods in Physics Research*, B, 80-81, 889-894, 1993
  - [19] Ishihara M., Baba S., Takahashi T., Arai T., Hayashi K., Fundamental thermomechanical properties of SiC-based structural ceramics subjected to high energy particle irradiations *Fusion Engineering and Design*, 51-52, 117-121, 2000
  - [20] Weber W. J., Wang L. M., Yu N., Hess N.J., Structure and properties of ion-beam-modified (6H) silicon carbide, *Materials Science and Engineering A*, 253, issue 1-2, 62-70, 1998
  - [21] Katoh Y., Snead L.L., Mechanical Properties of Cubic Silicon Carbide after Neutron Irradiation at Elevated Temperatures, *Journal of ASTM International (JAI)*, Vol. 2, Issue 8, 13, 2005